

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-281539

(43)Date of publication of application : 12.12.1991

(51)Int.Cl.

C08G 79/00
B29C 45/02
C08G 59/68
C08L 85/00
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 02-082932

(71)Applicant : TOSHIBA CORP

(22)Date of filing : 31.03.1990

(72)Inventor : KUREMATSU KAZUHIKO

(30)Priority

Priority number : 64 83567
02 37183Priority date : 31.03.1989
20.02.1990

Priority country : JP

JP

(54) ORGANOMETALLIC RESIN COMPOSITION, ORGANOMETALLIC POLYMER, EPOXY RESIN COMPOSITION AND RESIN-SEALING TYPE SEMICONDUCTOR DEVICE

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the tile composition containing an organometallic compound having a a chelate ring a specific curing agent or curing catalyst and having long pot life and large industrial value.

CONSTITUTION: The objective composition obtained by blending 1 equivalent organometallic compound (preferably aluminum chelate compound having acetylacetone, etc., as ligand) having a chelate ring with (B) 0.01-20 equivalent amount of at least one kind of acidic or basic curing agent or a curing catalyst and a curing agent or curing catalyst having a heterocyclic group containing at least one of oxygen, nitrogen, sulfur and filler as necessary. Furthermore, the above-mentioned composition is thermally cured at 200° C to afford the organometallic polymer which is blended with an epoxy resin and at least one kind of acidic or basic epoxy resin-curing agent or curing catalyst, in order to give the epoxy resin composition. A semiconductor chip is subjected to a resin sealing by using the above-mentioned resin composition, to provide the objective resin sealing semiconductor device.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑫ 公開特許公報(A)

平3-281539

⑤ Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成3年(1991)12月12日

C 08 G 79/00
B 29 C 45/02
C 08 G 59/68
C 08 L 85/00
H 01 L 23/29
23/31

NUR

7167-4J

NKM

2111-4F

L SA

8416-4J

7167-4J

6412-4M H 01 L 23/30

R

審査請求 未請求 請求項の数 4 (全15頁)

⑭ 発明の名称 有機金属樹脂組成物、有機金属重合体、エポキシ樹脂組成物、及び
樹脂封止型半導体装置

⑯ 特 願 平2-82932

⑰ 出 願 平2(1990)3月31日

優先権主張 ⑱ 平1(1989)3月31日 ⑲ 日本(JP) ⑳ 特願 平1-83567

㉑ 平2(1990)2月20日 ㉒ 日本(JP) ㉓ 特願 平2-37183

② 発 明 者 樽 松 一 彦 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合
研究所内

⑦ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

④ 代 理 人 弁 理 士 鈴 江 武 彦 外3名

明 細 書

1. 発明の名称

有機金属樹脂組成物、有機金属重合体、
エポキシ樹脂組成物、及び
樹脂封止型半導体装置

2. 特許請求の範囲

(1) (a) キレート環を有する有機金属化合物
と、

(b) 酸性又は塩基性の硬化剤、酸性又は
塩基性の硬化触媒、酸素、窒素及び硫黄のうち少
なくとも1つを含む複素環基を有する硬化剤、並
びに同複素環基を有する硬化触媒から選ばれる少
なくとも1種

を含有することを特徴とする有機金属樹脂組成物。

(2) 請求項(1)記載の有機金属樹脂組成物の
重合体からなることを特徴とする有機金属重合体。

(3) (c) エポキシ樹脂と、

(d) 請求項(2)記載の有機金属重合体と、

(e) 酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化
剤、及び酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化触媒

から選ばれる少なくとも1種

を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

(4) 半導体チップを請求項(3)記載のエポキ
シ樹脂組成物を用いて樹脂封止したことを特徴と
する樹脂封止型半導体装置。

3. 発明の詳細な説明

[発明の目的]

(産業上の利用分野)

本発明は有機金属樹脂組成物、この有機金属
樹脂組成物の重合体からなる有機金属重合体、こ
の有機金属重合体を含有するエポキシ樹脂組成物、
及びこのエポキシ樹脂組成物を用いて樹脂封止さ
れた樹脂封止型半導体装置に関する。

(従来の技術)

熱硬化性樹脂は、電気的、機械的及び物理的
特性が優れており、電気・電子分野の機器及び部
品の成形材料、絶縁材料又は封止材料としての用
途をはじめとして、接着剤、建材、構造材などの
用途で広く用いられている。こうした熱硬化性樹
脂には、電気的、機械的及び物理的特性に加えて、

他の特性が要求される場合がある。こうした特性のひとつとして、成形時のポットライフの改善が挙げられる。また、他の特性として、重合体の熱崩壊性が挙げられる。

まず、成形時のポットライフの改善について説明する。熱硬化性樹脂の硬化反応は、硬化剤又は硬化触媒の作用により著しく促進される。一般に、硬化剤及び硬化触媒の作用は、温度とともに活性となる。しかし、この硬化反応は予熱時などの比較的低温でも徐々に進むため、熱硬化性樹脂に硬化剤又は硬化触媒を添加してから粘度が上昇してモールドへの注入ができなくなるまでの可使用時間（ポットライフ）には制約がある。一方、熱硬化性樹脂は温度の下降とともに流動性が低下するので、流動作業を行う温度には下限がある。したがって、作業プロセスや作業条件を改善するうえで、熱硬化性樹脂組成物のポットライフを長くすることに対する要求は大きい。この要求は、種々の技術分野で求められている。

半導体装置の封止に関する分野においては、生

産工程の自動化に伴って、封止工程の自動化が急速に進んでいる。例えば、トランスファー成形装置の自動化技術として、マルチプランジャー方式、1フレームモールド方式、ミニタブレット方式などが採用されている。同じ目的で、低圧射出成形も採用されている。

従来、封止樹脂としては、主にフェノールノボラック樹脂硬化のエポキシ樹脂組成物が用いられている。このエポキシ樹脂組成物は、成形時間を短縮させることを考慮して、予熱工程でのポットライフが短いものであった。しかし、予熱工程が短時間であると、予熱をコントロールする際に、予熱不足や過度の予熱を招くことが多い。この結果、予熱工程の自動化システムへの精度の要求が厳しくなり、自動化システムの複雑化とコストアップを招く。したがって、自動化された封止工程の稼働効率を向上させるためには、封止樹脂が長時間の予熱工程に耐えられる、ポットライフの長いものでなくてはならない。

次に、熱硬化性樹脂の重合体の熱崩壊性について

て説明する。近年、建築・土木工事又は機械などの組立工程などの分野では、手軽に接合して仮止めでき、しかも解体時に容易に除去できる接着剤やボルトの必要性が高まってきている。また、塗装の分野では、短期間で塗り替えを必要とする場合などに、その塗膜を容易に剝離できる塗料が必要とされている。こうした接着剤、ボルト又は塗料として、加熱により崩壊する硬化樹脂からなるものが検討されている。

しかし、硬化樹脂を熱崩壊させるには、高温で加熱する必要がある。このため、接着剤やボルトで接合される部材又は塗料が塗装される部材も、耐熱性の高い材料からなるものに制限される。したがって、通常の使用温度範囲内では機械的強度など必要とされる特性を有し、しかも比較的低い加熱温度で容易に熱崩壊する硬化樹脂が要望されている。

（発明が解決しようとする課題）

本発明は以上の課題を解決するためになされたものである。すなわち、ポットライフの長い有

機金属樹脂組成物を提供することを目的とする。また、この有機金属樹脂組成物の重合体からなり、比較的低い加熱温度で容易に熱崩壊する有機金属重合体を提供することを目的とする。また、この有機金属重合体を含有し、ポットライフが長く封止樹脂として好適なエポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。更に、このエポキシ樹脂組成物を用いて樹脂封止された樹脂封止型半導体装置を提供することを目的とする。

〔発明の構成〕

（課題を解決するための手段と作用）

本発明の有機金属樹脂組成物は、(a)キレート環を有する有機金属化合物と、(b)酸性又は塩基性の硬化剤、酸性又は塩基性の硬化触媒、酸素、空素及び硫黄のうち少なくとも1つを含む複素環基を有する硬化剤、並びに同複素環基を有する硬化触媒から選ばれる少なくとも1種を含有することを特徴とするものである。

本発明の有機金属重合体は、前記有機金属樹脂組成物の重合体からなることを特徴とするもので

ある。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、(c) エポキシ樹脂と、(d) 前記有機金属重合体と、(e) 酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化剤、及び酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化触媒から選ばれる少なくとも1種を含有することを特徴とするものである。

本発明の樹脂封止型半導体装置は、半導体チップを前記エポキシ樹脂組成物を用いて樹脂封止したことを特徴とするものである。

以下、本発明を更に詳細に説明する。

本発明の有機金属樹脂組成物において、(a) 成分のキレート環を有する有機金属化合物としては、アルミニウム (Al)、チタン (Ti)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、銅 (Cu)、鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、ニッケル (Ni)、バナジウム (V)、スズ (Sn)、コバルト (Co) などの金属と有機基とでキレート環を構成する化合物が挙げられる。これらのキレート環を有する有機金属化合物のうちでも、アルミニウムキレート化合物が好ましい。

る。

カルボン酸の例を挙げると、酢酸、シュウ酸、ギ酸、酒石酸、マロン酸、リンゴ酸、コハク酸、フマル酸、マレイン酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、フタル酸、サリチル酸、安息香酸、ピロメリット酸、ナフタレンカルボン酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、トリメリット酸、ナジック酸、ヘキサヒドロフタル酸などである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

スルホン酸の例を挙げると、ベンゼンスルホン酸、トルエンスルホン酸、ニトロベンゼンスルホン酸、エチルベンゼンスルホン酸、ジクロロ-p-キシレンスルホン酸などである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

スルホン酸エステルの例を挙げると、前述したスルホン酸のメチルエステル、エチルエステル、プロピルエステル、イソプロピルエステル、ブチルエステル、フェニルエステルなどである。これ

アルミニウムキレート化合物の具体例としては、配位子として、アセチルアセトン、トリフルオロアセチルアセトン、ペンタフルオロアセチルアセトン、エチルアセトアセテート、サリチルアルデヒド、ジエチルマロネートなどを有するものが挙げられる。これらのうち1種又は2種以上が使用される。

本発明の有機金属樹脂組成物において、(b) 成分のうち、硬化剤は有機金属樹脂の硬化反応に直接関与し、生成ポリマー骨格中に導入される化合物である。また、(b) 成分のうち、硬化触媒は有機金属樹脂の硬化反応には直接関与せず生成ポリマー骨格中には導入されないが、その反応を促進するものである。

(b) 成分のうち、酸性又は塩基性の硬化剤としては、有機酸(カルボン酸、スルホン酸)及びその無水物、スルホン酸エステル、有機及び有機非金属ヒドロキシ化合物、第3アミンを除く第1及び第2アミン、並びにイミノ基を有する化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられ

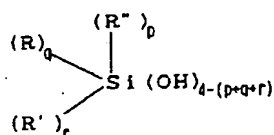
らのうち1種又は2種以上を使用することができる。

酸無水物の例を挙げると、フタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルテトラヒドロフタル酸無水物、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、ナジック酸無水物、メチルナジック酸無水物、クロレンジック酸無水物、ドデセニルコハク酸無水物、メチルコハク酸無水物、ベンゾフェノンテトラカルボン酸無水物、ピロメリット酸無水物、マレイン酸無水物などである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

有機ヒドロキシ化合物の例を挙げると、フェノール、レゾルシノール、クレゾール、ハロゲン化フェノール、ピクリン酸、ヒドロキノン、ピロカテコール、アミノフェノール、4,4'-ジヒドロキシジフェニルプロパン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルメタン、3,3'-ジヒドロキシジフェニルプロパン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4,4'-ジヒ

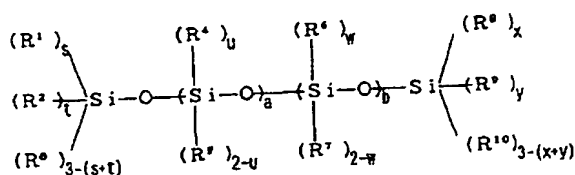
ドロキシ-2,2'-ジメチルジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエタン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルケトン、2-アリルフェノール、2-アリルクレゾールなどである。また、これらの有機ヒドロキシ化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドなどのアルデヒド類との反応により得られる化合物も用いられる。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

有機非金属ヒドロキシ化合物の例を挙げると、シラノール基を有するか、シラノール基を生ずる有機ケイ素化合物であればいかなるものでもよい。このうちシラノール基を有するものとしては、オルガノシラン及びオルガノシロキサンが挙げられる。オルガノシランは、一般式



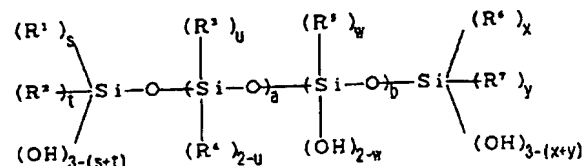
(式中、R、R'、R''はそれぞれアルキル基、フェニル基、アラルキル基、ビニル基、アリル基

(式中、R、R'、R''、R'''はそれぞれアルキル基、フェニル基、アラルキル基、ビニル基、アリル基を表わし、同一であっても異なってもよい。p、q、rはそれぞれ0～3の正の整数で、p+q+rは4未満である。)で示される。また、加水分解性基を有するオルガノシロキサンは、一般式



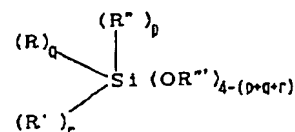
(式中、R¹～R¹⁰はそれぞれアルキル基、フェニル基、ビニル基、アラルキル基、アリル基又は加水分解性基を表わし、同一であっても異なってもよい。s、t、x、yはそれぞれ0～2の正の整数で、s+t及びx+yはそれぞれ3未満である。u、wは0～2の整数である。a、bは0又は1以上の正の整数である。)で示される。

を表わし、同一であっても異なってもよい。p、q、rはそれぞれ0～3の正の整数で、p+q+rは4未満である。)で示される。また、オルガノシロキサンは、一般式



(式中、R¹～R⁷はそれぞれアルキル基、フェニル基、ビニル基、アラルキル基、アリル基又は加水分解性基を表わし、同一であっても異なってもよい。s、t、x、yはそれぞれ0～2の正の整数で、s+t及びx+yはそれぞれ3未満である。u、wは0～2の整数である。a、bは0又は1以上の正の整数である。)で示される。

更に、加水分解性基を有するオルガノシランは、一般式



以上のオルガノシラン又はオルガノシロキサンとしては、より具体的には特公開57-5403号公報などに記載されているものがあげられる。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

第1アミン又は第2アミンの例を挙げると、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジプロピルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ヘキサメチレンジアミンなどの脂肪族アミン；N-アミノエチルピペラジン、メンセンジアミン、イソフクロンジアミン、3,3'-ジメチル-4,4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサンなどの脂環式アミン；キシリレンジアミンなどの脂肪-芳香族アミン；メタフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルエーテル、ジアミノジフェニルスルホンなどの芳香族アミンなどである。更に、例えばリノレン酸とエチレンジアミンとの反応などにより得られるポリアミド樹脂；ヒドロキシエチル-ジエチレントリアミン、ビスヒドロキシエチル-ジ

エチレントリアミン、ビスシアノエチル-ジエチレントリアミン、エポキシ樹脂-ジエチレントリアミンなどの脂肪族ポリアミンの付加物；脂肪族ポリアミンとケトンとの反応により得られるケトイミン；3,9-ビス(3-アミノプロピル)-2,4,8,10-テトラキススピロ(5,5)ウンデセン；メタフェニレンジアミン-フェニルグリシジルエーテル付加物、ジアミノフェニルメタン-エポキシ樹脂付加物などの芳香族変性ポリアミン；ジシアンジアミド、アジピン酸ジヒドラジド、セバシン酸ジヒドラジド、ドデカン酸ジヒドラジド、トリレンジイソシアナート、ジフェニルメタンジイソシアナートなどのアミド型化合物；アミノフェノール、ジアミノフェノール、トリアミノフェノールなどが挙げられる。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

以上のような硬化剤は、(a)成分のキレート環基1当量に対して0.01~20当量の割合で用いることが望ましい。この理由は、0.01当量未満では反応性の低下を招き、20当量を超えると未反応物が

残留するためである。

本発明において、(b)成分のうち酸性又は塩基性の硬化触媒としては第3アミン、異環型アミン、イミダゾール化合物、三フッ化ホウ素錯化合物、四フッ化ホウ素錯化合物、脂肪族又は脂環式スルホニウム塩、第4アンモニウム塩、及び有機リン化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

第3アミンの例を挙げると、トリ-2,4,6-ジメチルアミノメチルフェノール、2-ジメチルアミノメチルフェノール、 α -メチルベンジルジメチルアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、トリエチルアミンなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

異環型アミンの例を挙げると、ピリジン、ピペリジン、アミノエチルピペラジンなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

イミダゾール化合物の例を挙げると、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-ウンデ

シルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-メチル-4-エチルイミダゾール、1-ブチルイミダゾール、1-プロピル-2-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1)']エチル-s-トリアジン、2,4-ジアミノ-6-[2'-エチルイミダゾリル-(1)']エチル-s-トリアジン、2,4-ジアミノ-6-[2'-ウンデシルイミダゾリル-(1)']エチル-s-トリアジンなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

三フッ化ホウ素錯化合物の例を挙げると、三フッ化ホウ素モノエチルアミン錯体、三フッ化ホウ素ピペリジン錯体、三フッ化ホウ素トリエタノールアミン錯体、三フッ化ホウ素2,4-ジメチルアニリン錯体、三フッ化ホウ素ベンジルアミン錯体などである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

四フッ化ホウ素錯化合物の例を挙げると、四フッ化ホウ素トリエチルアミン塩、四フッ化ホウ素モノエチルアミン塩、四フッ化ホウ素ジエチルアミン塩、四フッ化ホウ素n-ヘキシルアミン塩などである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

脂肪族又は脂環式スルホニウム塩の例を挙げると、カルボキシエトキシエチルテトラメチレンスルホニウムヘキサフルオロアルセネート、カルボキシエトキシエチルテトラメチレンスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、ビス(カルボキシメトキシメチル)メチルスルホニウムヘキサフルオロアルセネート、ビス(2-カルボキシメトキシエチル)メチルスルホニウムヘキサフルオロアルセネート、ジアリルメチルスルホニウムヘキサフルオロアルセネート、シアノメチルテトラメチレンスルホニウムヘキサフルオロアルセネートなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

第4アンモニウム塩の例を挙げると、セチルトリメチルアンモニウムブロミド、セチルトリメチルアンモニウムクロリド、ドデシルトリメチルアンモニウムアイオダイド、ドデシルトリメチルアンモニウムクロリド、ベンジルジメチルパルミチンアンモニウムクロリド、アリルココナットトリメチルアンモニウムブロミド、ベンジルジメチルステアシルアンモニウムブロミド、ステアシルトリメチルアンモニウムクロリド、ベンジルジメチルテトラデシルアンモニウムアセチレートなどである。また、1,8-ジアザ-ビスクロ(5,4,0)ウンデセン-7及びそのフェノール塩、ヘキサ酸塩、オレイン酸塩などを用いることができ、更にアルキルアミノボランや芳香族有機ホウ酸エステルなどを用いることもできる。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

有機リン化合物の例を挙げると、トリフェニルホスフィンやそのホウ素化合物との錯体、トリフェニルホスファイト、トリフェニルホスフェイトなどである。これらのうち1種又は2種以上を使

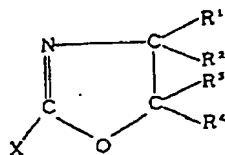
用することができる。

以上のような硬化触媒は、(a)成分のキレート環基1当量に対して0.01~20当量の割合で用いることが望ましい。この理由は、0.01当量未満では硬化が不充分となって機械的、熱的、電気的特性の低下を招き、一方20当量を超えると反応が急速に進み、反応による劣化を招くうえ、作業に支障をきたすためである。

本発明において、(b)成分のうち、酸素、窒素及びイオウのうち少なくとも1つ含む複素環基を有する硬化剤又は硬化触媒としては、環状イミノエーテル基を少なくとも1つ有する化合物、エポキシ基を少なくとも1つ有する化合物が挙げられる。

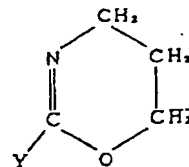
環状イミノエーテル基を少なくとも1つ有する化合物としては、モノオキサゾリン化合物、オキサジン系化合物、ビスオキサゾリン化合物などが挙げられる。

モノオキサゾリン化合物の例を挙げると、下記構造式で示されるものがある。



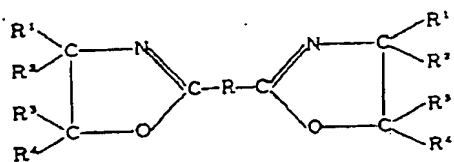
(式中、Xは水素、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、t-ブチル基、n-ヘプチル基、n-ヘキシル基、n-ペンチル基、n-ウンデシル基、n-ヘプタデシル基、シクロヘキシル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、9-デセニル基、フェニル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、β-ナフチル基、CH₃COCH₂CH₂-、CH₃COO(CH₂)₅-、HO(CH₂)₅-など、R¹~R⁴はメチル基、エチル基などである)。

オキサジン系化合物の例を挙げると、下記構造式で示されるものがある。



(式中、Yは水素、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-ブチル基、n-ペンチル基、フェニル基などである)。

ビスオキサゾリン化合物の例を挙げると、下記構造式で示されるものがある。



(式中、Rは2価の炭化水素基、R¹~R⁴は水素又は炭化水素基である)。より具体的には、1,2-ビス(2-オキサゾリニル-2)エタン、1,4-ビス(2-オキサゾリニル-2)ブタン、1,6-ビス(2-オキサゾリニル-2)ヘキサ、1,8-ビス(2-オキサゾリニル-2)オクタン、1,4-ビス(2-オキサゾリニル-2)シクロヘキサなど、オキサゾリン環に

アルキル基が結合したオキサゾリン化合物や、1,2-ビス(2-オキサゾリニル-2)ベンゼン、1,3-ビス(2-オキサゾリニル-2)ベンゼン、1,4-ビス(2-オキサゾリニル-2)ベンゼン、5,5'-ジメチル-2,2'-ビス(2-オキサゾリニル-2)ベンゼン、4,4',4'-テトラメチル-2,2'-ビス(2-オキサゾリニル-2)ベンゼン、1,3-ビス(5-メチル-2-オキサゾリニル-2)ベンゼンなど、オキサゾリン環に芳香族が結合したオキサゾリン化合物が挙げられる。更に、以上に例示したオキサゾリン化合物のほかにも、2,2'-ビス(2-オキサゾリン)、2,2'-ビス(4-メチル-2-オキサゾリン)、2,2'-ビス(5-メチル-2-オキサゾリン)などが挙げられる。

環状イミノエーテル基を少なくとも1つ有する化合物としては、これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

エポキシ基を少なくとも1つ有する化合物としては、一般にエポキシ化合物として知られているものであればいかなるものであってもよい。例え

ば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビスフェノールK型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアナートやヒダントインエポキシなどの含複素環エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、プロピレングリコールジグリシジルエーテルやペンタエリスリトポリグリシジルエーテルなどの脂肪族エポキシ樹脂、芳香族、脂肪族又は脂環式カルボン酸とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるエポキシ樹脂、スピロ環含有エポキシ樹脂、オルソアリルフェノールノボラック化合物とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールAの各水酸基のオルソ位にアリル基を有するジアリルビスフェノール化合物とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、

フェニルグリシジルエーテルなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

以上のような硬化剤又は硬化触媒は、(a)成分のキレート環基1当量に対してその複素環基が0.01~20当量となる割合で用いることが望ましい。この理由は、0.01当量未満では硬化反応が十分に促進されず、一方20当量を超えて配合しても硬化反応の促進効果が飽和してしまうためである。

(b)成分の配合量が前述した範囲であれば、温度が低いときには硬化反応の抑制効果が大いだが、温度が上昇すると硬化反応の抑制効果が著しく減少し、硬化反応を阻害しなくなる。

本発明の有機金属樹脂組成物には、その使用目的に応じて前述した材料のほか更に充填剤を配合することができる。充填剤としては、繊維質充填剤、各種形状の粉粒体、及びこれらの混合物が挙げられる。

繊維質充填剤の例を挙げると、ガラス繊維、石棉、アルミナ繊維、アルミナとシリカを成分とするセラミック繊維、ボロン繊維、ジルコニア繊維、

炭化ケイ素繊維、金属繊維、ポリエステル繊維、アラミド繊維、ナイロン繊維、フェノール繊維、天然の動植物繊維などである。

粉粒体充填剤の例を挙げると、シリカ、アルミナ、タルク、炭酸カルシウム、クレイ、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、二酸化チタン、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、カオリン、雲母、ジルコニアなどである。

また、本発明の有機金属樹脂組成物には、必要に応じて離型剤、難燃剤、顔料、染料や、シランカップリング剤、チタンカップリング剤、ジルコニアルミニウム系カップリング剤などの表面処理剤を配合してもよい。

以上のような本発明の有機金属樹脂組成物は、必要ならば溶剤に分散してワニス、塗料、又は接着剤として使用することもできる。また、本発明の有機金属樹脂組成物をロービング、クロス又は不織布とともに配合し、積層板などの積層品、又はハンドテープなどの絶縁テープとして用いるこ

ともできる。

本発明の有機金属樹脂組成物は、成形するまでの温度でのポットライフは長い、成形時の硬化反応が抑制されることはなく、作業性に優れている。

本発明の有機金属重合体は、前述した有機金属樹脂組成物を通常100~200℃の温度で熱硬化させることにより得られる。この有機金属重合体は常温では十分な機械的強度などの特性を有し、しかも200~300℃の比較的低い加熱温度で容易に熱崩壊する。したがって、この有機金属重合体で例えばボルトを作製すれば、建築・土木工事又は機械などの組立工程でこれを仮止めに使用でき、解体時にはバーナなどによる比較的低温の加熱でこれを熱崩壊させて容易に除去することができる。また、有機金属樹脂組成物を接着剤又は塗料として用いた場合にも、その硬化物である有機金属重合体を比較的低温の加熱で熱崩壊させて容易に除去することができる。しかも、接合される部材又は塗装される部材が高い耐熱性を有するものであ

る必要はない。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、(c)成分のエポキシ樹脂としては、一般にエポキシ化合物として知られているものであればいかなるものであってもよい。例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビスフェノールK型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアナートやヒダントインエポキシなどの含複素環エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、プロピレングリコールジグリシジルエーテルやペンタエリスリットポリグリシジルエーテルなどの脂肪族エポキシ樹脂、芳香族、脂肪族又は脂環式カルボン酸とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるエポキシ樹脂、スピロ環含有エポキシ樹脂、オルソーアリアルフェノールノボラック化合物とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビ

スフェノールAの各水酸基のオルソ位にアリル基を有するジアリルビスフェノール化合物とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、フェニルグリシジルエーテルなどである。これらのうち1種又は2種以上を使用することができる。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、(d)成分である有機金属重合体としては、前述したものが用いられる。この有機金属重合体はエポキシ樹脂の硬化剤又は硬化触媒として作用する。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、(e)成分である酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化剤、及び酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化触媒としては、本発明の有機金属樹脂組成物の(b)成分である酸性又は塩基性の硬化剤、及び酸性又は塩基性の硬化触媒として例示したものと同一ものが挙げられる。エポキシ樹脂組成物の(e)成分は、有機金属樹脂組成物の(b)成分と同一でも異なってもよい。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、(d)成分の有機金属重合体は、(c)成分のエポキシ樹脂100重量部に対して、0.05~500重量部の範囲で配合することが好ましい。0.05重量部未満では有機金属重合体によるポットライフの長期化の効果が無い。500重量部を超えるとエポキシ樹脂の特性が発揮できなくなる。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、(e)成分の酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化剤は、(c)成分のエポキシ樹脂100重量部に対して、20~200重量部の範囲で配合することが好ましい。20重量部未満では未反応のエポキシ樹脂が残留し、200重量部を超えると未反応の硬化剤が残留するため、硬化物の特性が劣化する。また、(e)成分の酸性又は塩基性のエポキシ樹脂硬化触媒は、(c)成分のエポキシ樹脂100重量部に対して、0.01~20重量部の範囲で配合することが好ましい。0.01重量部未満では反応が遅く、硬化物が得られないか又は硬化物を得るのに長時間を要し、作業性が悪い。20重量部を超えると異常発熱反応が誘

免され、硬化物の特性が劣化する。

本発明のエポキシ樹脂組成物には、有機金属樹脂組成物の場合と同様に、前述した材料のほかに必要に応じて、充填剤、離型剤、難燃剤、顔料、染料、表面処理剤を配合してもよい。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、前述した各成分を、加熱ロール、ニーダー又は押出機によって溶融混練したり、微粉砕可能な特殊混合機によって混合したり、これらの各方法を適宜組み合わせて容易に製造することができる。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、硬化前の予熱温度でのポットライフは長い、硬化時に硬化反応が抑制されることはなく、作業性に優れている。

本発明の樹脂封止型半導体装置は、前述したエポキシ樹脂組成物を用い、半導体チップを樹脂封止することにより製造される。この場合、最も一般的には低圧トランスファ成形が用いられるが、インジェクション成形、圧縮成形、注型などによっても封止することができる。封止後のアフタキュアは150℃以上の温度で行うことが望ましい。

て有機金属樹脂組成物を調製した。

比較例3

クレゾールノボラックエポキシ樹脂 (EPCN-195 XL、住友ベークライト製、当量204)、フェノールノボラック樹脂、及びイミダゾール (2E4NZ-CN) を第1表に示すように配合してエポキシ樹脂組成物を調製した。

これら実施例1～8及び比較例1～3の樹脂組成物について、ブラベンダー試験機 (東洋精機製、L-2型) により、120℃、180℃、180℃、200℃でのゲル化時間を測定した結果を第1表に示す。また、実施例3及び比較例3の樹脂組成物について、温度とゲル化時間との関係を第1図に示す。

また、これらの樹脂組成物を、窒素気流下において110℃で6時間攪拌した。これらの重合体を120℃で溶融し、2枚のステンレス板に塗布した。両者を重ね合わせて170℃で1時間加熱硬化した硬化樹脂により接合した。これらの試料について、室温における硬化樹脂の接合せん断強度を測定し

なお、本発明のエポキシ樹脂組成物によって封止される半導体チップは特に限定されない。

(実施例)

以下、本発明の実施例を説明する。

実施例1～5及び比較例1、2

(a) 成分としてアルミニウムトリス (エチルアセトアセテート) (アルミキレートAITR、川研ファインケミカル製)、及び(b) 成分としてフェノールノボラック樹脂 (分子量800) を第1表に示すように配合して有機金属樹脂組成物を調製した。

実施例6～8

(a) 成分としてアルミニウムトリス (アセチルアセトネート) (アルミキレートAl(acac))、川研ファインケミカル製)、アルミニウムトリス (サリチルアルデヒド) (アルミキレートAl(sa))、川研ファインケミカル製)、又はアルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート (アルミキレートAIM、川研ファインケミカル製)、及び(b) 成分としてフェノールノボラック樹脂 (分子量800) を第1表に示すように配合し

た。更に、これらの試料を250℃に加熱し、硬化樹脂が熱崩壊してステンレス板が自然剥離するまでの時間 (以下、熱崩壊時間という) を測定した。これらの結果を第1表に示す。

実施例9～15

(a) 成分としてアルミニウムトリス (エチルアセトアセテート) (アルミキレートAITR、川研ファインケミカル製)、及び(b) 成分のうち塩基性硬化剤としてトリエチルテトラミン、ジアミノジフェニルスルホン、又はジアミノジフェニルメタン、(b) 成分のうち塩基性硬化触媒としてベンジルジメチルアミン、(b) 成分のうち複素環系を有する硬化剤又は硬化触媒として1,8-ジアザビシクロ (5,4,0)ウンデセン-7、2-フェニル-2-オキサゾリン、又は2,2-(1,8-フェニレン)-ビス (2-オキサゾリン) を第2表に示すように配合して有機金属樹脂組成物を調製した。

比較例4～6

クレゾールノボラックエポキシ樹脂 (EPCN-195 XL)、及び塩基性硬化剤としてトリエチルテトラ

ミン、ジアミノジフェニルスルホン、又はジアミノジフェニルメタンを第2表に示すように配合してエポキシ樹脂組成物を調製した。

これら実施例9～15及び比較例4～6の樹脂組成物について、140℃、180℃、200℃でのゲル化時間を測定した結果を第2表に示す。

また、これらの樹脂組成物を用い、前述したのと同様にして、重合体の接着せん断強度及び熱崩壊時間を測定した。これらの結果を第2表に示す。
実施例16～21

(a) 成分としてアルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)(アルミキレートAITR、川研ファインケミカル調製)、及び(b)成分のうち酸性硬化剤又は酸性硬化触媒としてアジピン酸、4,4'-ジヒドロキシジフェニルプロパン酸、メチルヘキサヒドロキシ無水フタル酸、又はトリフェニルエチルシロキサン、(b)成分のうち塩基性硬化触媒としてトリフェニルホスフィン、(b)成分のうち複素環基を有する硬化剤又は硬化触媒としてクレゾールノボラックエポキシ樹脂(ESCN-195XL)

を第3表に示すように配合して有機金属樹脂組成物を調製した。

比較例7、8

クレゾールノボラックエポキシ樹脂(ESCN-195XL)、及び酸性硬化剤又は酸性硬化触媒としてアジピン酸、又は4,4'-ジヒドロキシジフェニルプロパンを第3表に示すように配合してエポキシ樹脂組成物を調製した。

これら実施例16～21及び比較例7、8の樹脂組成物について、140℃、180℃、220℃でのゲル化時間を測定した結果を第3表に示す。

また、これらの樹脂組成物を用い、前述したのと同様にして重合体を得た後、硬化した硬化物の接着せん断強度及び熱崩壊時間を測定した。これらの結果を第3表に示す。

第1表～第3表から明らかなように、実施例1～21の有機金属樹脂組成物は、低温ではゲル化時間が長く、高温ではゲル化時間が短い。このことはポットライフが長く、硬化時間が短いことを意味している。したがって、これらの有機金属樹脂

組成物を用いれば、成形性が良好となり、作業プロセスや作業条件を改善できる。

また、第1表～第3表から明らかなように、実施例1～21の有機金属樹脂組成物の硬化樹脂は、室温における接着せん断強度が高く、250℃における熱崩壊時間が50分以下と短い。

実施例22～32

有機金属重合体A～Kの調製

(a) 成分としてアルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)(アルミキレートAITR、川研ファインケミカル調製)、アルミニウムトリス(アセチルアセトネート)(アルミキレートAl(acac)₃、川研ファインケミカル調製)、アルミニウムトリス(サリチルアルデヒド)(アルミキレートAl(sa)₃、川研ファインケミカル調製)、又はアルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート(アルミキレートAIM、川研ファインケミカル調製)、及び(b)成分としてフェノールノボラック樹脂(分子量800)、トリエチル тетраミン、ジアミノジフェニルスルホン、メチルヘキサ

ヒドロキシ無水フタル酸、又はトリフェニルエチルシロキサンを第4表に示すように配合し、窒素気流中、110℃で8時間攪拌することにより、有機金属重合体A～Kを調製した。

(c) 成分としてクレゾールノボラックエポキシ樹脂(ESCN-195XL、住友ベークライト調製、エポキシ当量204)100重量部、(d)成分として前述した有機金属重合体A～Kのうちの1種14重量部、(e)成分としてフェノールノボラック樹脂(分子量800)50重量部のほか、離型剤としてカルナバワックス1.2重量部、着色剤としてカーボン粉末1.8重量部、充填剤として破砕状溶融シリカ(平均粒径20 μ m)500重量部、難燃助剤として三酸化アンチモン粉末11重量部、充填剤の表面処理剤としてエポキシシラン系カップリング剤2.4重量部を配合し、70～100℃の二軸ロールで混練し、冷却粉碎し、タブレット化して半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

比較例9、10

実施例22～32で用いた有機金属重合体A～Kの

代わりに、トリフェニルホスフィン1.5重量部、又は2-ヘプタデシルイミダゾール(C₁₇H₂₇N₂)1.8重量部を用いた以外は実施例22~32と同様にして半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

これら実施例22~32及び比較例9~10のエポキシ樹脂組成物について、ブラベンダー試験機(東洋精機製、L-2型)により、120℃、200℃でのゲル化時間を測定した。

また、各エポキシ樹脂組成物を用い、低圧トランスファ成形機により、200℃、80kg/cm²、180秒の条件で所定の試験片を作製した。得られた試験片について、室温における曲げ強さと曲げ弾性率、ガラス転移点(T_g)、線膨張係数(T_g以下)を測定した。

また、各エポキシ樹脂組成物を用い、低圧トランスファ成形機により、200℃、80kg/cm²、180秒の条件で、耐湿性評価用の半導体素子(8mm×8mm)を封止して樹脂封止型半導体装置を作製した。得られた樹脂封止型半導体装置について、プレッシャークッカー中で127℃、2.5気圧の飽

和水蒸気に所定時間さらした後、印加電圧15Vの条件で素子表面のA₂配線の腐食による断線不良の発生率を調べた(PCT)。

これらの結果を第5表に示す。

第5表から明らかなように、実施例22~32のエポキシ樹脂組成物は、120℃ではゲル化時間が長く、200℃ではゲル化時間が短い。このことは予熱時におけるポットライフが長く、樹脂封止時の成形時間が短いことを意味している。また、これらのエポキシ樹脂組成物は、封止樹脂に要求される十分な特性を備えている。したがって、これらのエポキシ樹脂組成物を用いれば、樹脂封止工程の自動化などに対応できる。

なお、以下に示すように、本発明で用いられるキレート環を有する有機金属化合物及び有機金属重合体は界面活性効果を有することも判明した。

参考例1

クレゾールノボラックエポキシ樹脂(ESCN-195XL)100重量部、フェノールノボラック樹脂(BGR556)57.2重量部、アルミニウムトリス(エ

チルアセトアセテート)(アルミキレートA1TR)6重量部、フェニルオキサゾリン2重量部のほか、充填剤として溶融シリカ(GR-80T)505.1重量部、離型剤としてカルナバワックス1.3重量部、ルバックス0.7重量部を配合し、半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

比較例11

アルミキレートA1TR6重量部及びフェニルオキサゾリン2重量部の代わりに、トリフェニルホスフィン1.5重量部を用いた以外は参考例1と同一の配合割合で半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

参考例1及び比較例11のエポキシ樹脂組成物について、フローテスターにより溶融粘度を測定した結果を第2図に示す。

第2図から明らかなように、参考例1の方が比較例11よりも溶融粘度が低い。これは、フェニルオキサゾリン及び(又は)アルミキレートA1TRによる界面活性効果であると考えられる。

参考例2

有機金属重合体Lの調製

アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)(アルミキレートA1TR)10重量部、及びフェノールノボラック樹脂(BGR556)30重量部を配合し、窒素気流中、110℃で8時間攪拌することにより、有機金属重合体L(ほぼ実施例3の有機金属重合体に対応する)を調製した。

クレゾールノボラックエポキシ樹脂(ESCN-195XL)100重量部、フェノールノボラック樹脂(BGR556)57重量部、有機金属重合体L13.3重量部のほか、充填剤として溶融シリカ(GR-80T)505重量部、離型剤としてカルナバワックス1.3重量部、ルバックス0.7重量部を配合し、半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

比較例12

有機金属重合体L13.3重量部の代わりに、トリフェニルホスフィン1.5重量部を用いた以外は参考例2と同一の配合割合で半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

比較例13

有機金属重合体L13.3重量部の代わりに、ジブチルアミノ-1,8-ジアザ-ビシクロ(5.4.0)ウンデセンのフェノールノボラック塩(U-CAT SAB52)6.0重量部を用いた以外は参考例2と同一の配合割合で半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

参考例2及び比較例12、13のエポキシ樹脂組成物について、フローテスターにより溶融粘度を測定した結果を第3図に示す。

第3図から明らかなように、参考例2の方が比較例12、13よりも溶融粘度が低い。これは、有機金属重合体による界面活性効果であると考えられる。

したがって、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、成形時の流動性が良好であり、樹脂封止された半導体装置のパッケージの外観が良好となる。

第 1 表

	実施例					比較例		実施例			比較例
	1	2	3	4	5	1	2	6	7	8	3
(a) アルミキレートA1TR (重量部) ([当量])	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	-	-	-	-
(a) アルミキレートAl(acac), (重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	100 [1]	-	-	-
(a) アルミキレートAl(sa), (重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	-	100 [1]	-	-
(a) アルミキレートAlH (重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	-	-	100 [1]	-
クレゾールノボラック (重量部) ・ エポキシ樹脂 ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	100 [1]
(b) フェノールノボラック樹脂 (重量部) ([当量])	1 [0.013]	11 [0.15]	43 [0.57]	100 [1.33]	231 [3.1]	0.5 [0.007]	1900 [24.0]	11 [0.15]	43 [0.57]	11 [0.15]	60 [0.89]
イミダゾール (重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.0 [0.02]
ゲル化時間 (秒)	120℃	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	2500
	160℃	2500	650	880	630	1500	5000<	5000<	5000<	5000<	800
	180℃	900	100	90	80	800	5000<	5000<	1200	400	500
	200℃	200	60	50	50	250	5000<	5000<	100	200	300
接合せん断強度 (kg/cm ²)	28	30	33	30	28	5	6	30	29	31	39
熱腐蝕時間 (分)	20	24	30	34	50	20	120<	40	35	50	120<

第 2 表

		実 施 例							比 較 例		
		9	10	11	12	13	14	15	4	5	6
(a) アルミキレートAITR	(重量部) ([当量])	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	-	-	-
(b) トリエチルテトラミン	(重量部) ([当量])	43 [1.62]	-	-	-	-	-	-	10 [0.58]	-	-
(b) ジアミノジフェニル スルホン	(重量部) ([当量])	-	11 [0.14]	-	-	-	-	-	-	30 [0.58]	-
(b) ジアミノジフェニルメタン	(重量部) ([当量])	-	-	11 [0.15]	-	-	-	-	-	-	30 [0.62]
(b) ベンジルジメチルアミン	(重量部) ([当量])	-	-	-	100 [1.14]	-	-	-	-	-	-
(b) 1,8-ジアザ-ピシクロ (5.4.0) ウンデセン-7	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	100 [1.89]	-	-	-	-	-
(b) 2-フェニル-2- オキサゾリン	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	100 [0.94]	-	-	-	-
(b) 2,2'- (1,8-フェニレン) ビス (2-オキサゾリン)	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	100 [0.63]	-	-	-
クレゾールノボラック エポキシ樹脂	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	-	-	100 [1]	100 [1]	100 [1]
ゲル化時間 (秒)	140 °C	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	140	140	130
	180 °C	300	1250	600	1200	750	1000	650	50	40	40
	200 °C	50	450	300	400	100	400	300	-	-	-
接着せん断強度	(kg/cm ²)	28	30	33	30	28	5	6	30	29	31
熱崩壊時間	(分)	20	24	30	34	50	20	120<	40	35	50

第 3 表

		実 施 例						比 較 例	
		16	17	18	19	20	21	7	8
(a) アルミキレートAITR	(重量部) ([当量])	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	100 [1]	-	-
(b) アジピン酸	(重量部) ([当量])	100 [1.89]	-	-	-	-	-	37 [1.05]	-
(b) 4,4'-ジヒドロキシ ジフェニルプロパン酸	(重量部) ([当量])	-	100 [1.05]	-	-	-	-	-	58 [0.91]
(b) メチルヘキサヒドロキシ 無水フタル酸	(重量部) ([当量])	-	-	100 [0.82]	-	-	-	-	-
(b) トリフェニルエチル シロキサン	(重量部) ([当量])	-	-	-	11 [0.5]	-	-	-	-
(b) トリフェニルホスフィン	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	43 [0.23]	-	-	-
(b) クレゾールノボラック エポキシ樹脂	(重量部) ([当量])	-	-	-	-	-	11 [0.07]	100 [1]	100 [1]
ゲル化時間 (秒)	140 °C	5000<	5000<	3200	5000<	5000<	5000<	1900	1600
	180 °C	20	750	900	600	750	3600	100	150
	220 °C	10	200	100	200	150	300	50	70
接着せん断強度	(kg/cm ²)	28	30	33	30	28	5	6	30
熱崩壊時間	(分)	20	24	30	34	50	20	120<	40

第 4 表

	有機金属重合体										
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K
(a) アルミキレートAlTR (重量部)	100	100	100	100	100	-	-	100	100	100	100
(a) アルミキレートAl(acac), (重量部)	-	-	-	-	-	100	-	-	-	-	-
(a) アルミキレートAl(sa), (重量部)	-	-	-	-	-	-	100	-	-	-	-
(b) フェノールノボラック樹脂 (重量部)	11	43	100	150	180	11	43	-	-	-	-
(b) トリエチルテトラミン (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	43	-	-	-
(b) ジアミノジフェニル スルホン (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	11	-	-
(b) メチルヘキサヒドロキシ 無水フタル酸 (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	100	-
(b) トリフェニルエチル シロキサン (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	11
対応する実施例	2	3	4	-	-	6	7	9	10	18	19

第 5 表

	実 施 例											比 較 例	
	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	9	10
(c) クレゾールノボラック エポキシ樹脂 (重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
(d) 有機金属重合体 (重量部)	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	-	-
	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	-	-
トリフェニル ホスフィン (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.5	-
2-ヘプタデシル イミダゾール (重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.6
(e) フェノールノボラック 樹脂 (重量部)	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
ゲル化時間 (秒)	120℃	5000	5000	4800	4900	5000	5000	4500	4900	3000	4000	360	400
	200℃	40	35	35	40	45	50	60	30	50	60	70	30
曲げ強度 (kg/cm ²)		16.1	16.2	16.2	16.0	15.8	15.5	15.8	17.0	16.5	16.0	15.5	16.2
曲げ弾性率 (kg/cm ²)		1900	1800	1850	1800	1820	1860	1900	1900	1800	1850	1700	1600
ガラス転移点T _g (℃)		130	135	140	145	143	135	130	135	140	130	130	160
線膨張係数×10 ⁻⁵ (1/℃)		1.6	1.6	1.7	1.8	1.9	1.9	1.8	1.9	1.8	1.7	1.7	1.8
PCT	50hr	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	5/20
	100hr	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	2/20	0/20	0/20	0/20	10/20
	200hr	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	3/20	2/20	3/20	0/20	20/20
(不良数) (試料数)	300hr	5/20	3/20	2/20	3/20	5/20	3/20	5/20	4/20	3/20	5/20	2/20	-

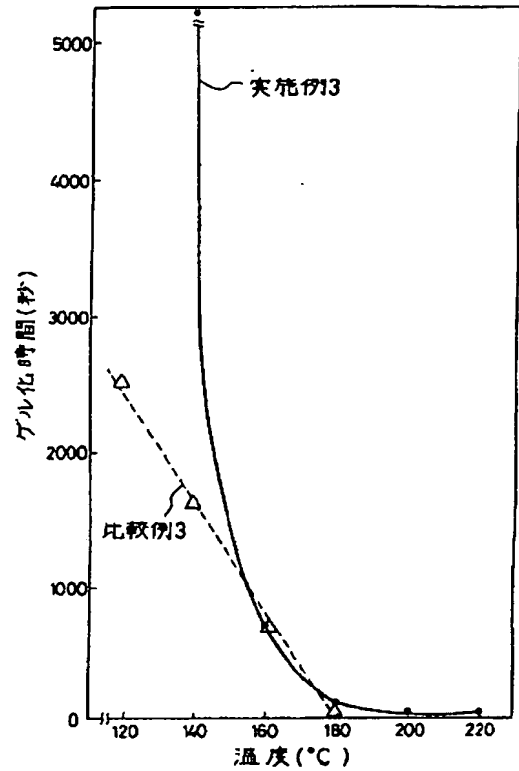
〔発明の効果〕

以上詳述したように、本発明によれば、ポットライフの長い有機金属樹脂組成物、この有機金属樹脂組成物の重合体からなり比較的低い加熱温度で容易に熱崩壊する有機金属重合体、この有機金属重合体を含むポットライフが長く封止樹脂として好適なエポキシ樹脂組成物、及びこのエポキシ樹脂組成物を用いて樹脂封止された樹脂封止型半導体装置を提供することができ、その工業的価値は大きい。

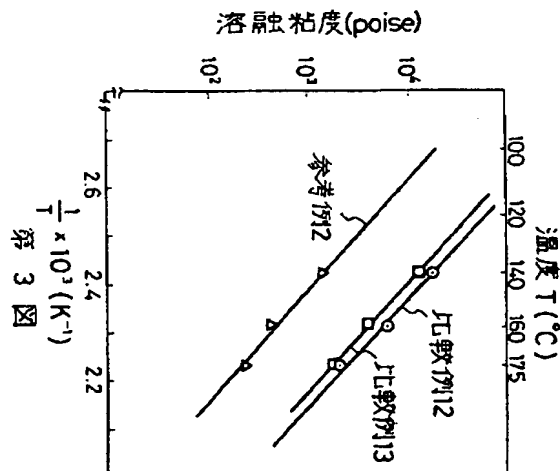
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の実施例3の有機金属樹脂組成物及び比較例3のエポキシ樹脂組成物のゲル化時間の温度依存性を示す図、第2図は参考例1及び比較例11のエポキシ樹脂組成物の熔融粘度を示す図、第3図は参考例2及び比較例12、13のエポキシ樹脂組成物の熔融粘度を示す図である。

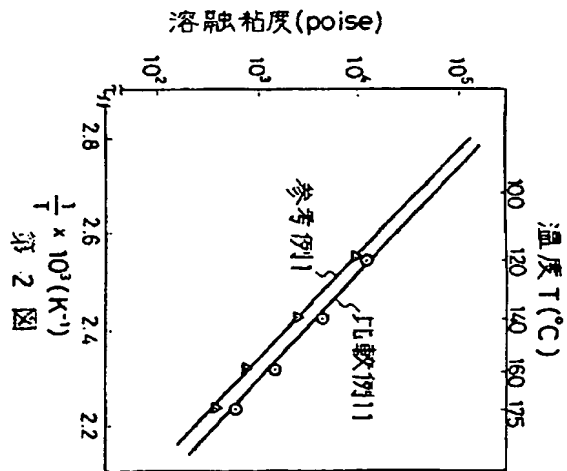
出願人代理人 弁理士 鈴江武彦



第1図



第3図



第2図